

氏 名	佐藤 隆
学 位 の 種 類	博士（工学）
学 位 記 番 号	博甲第 1092 号
学 位 授 与 の 日 付	平成 2 1 年 3 月 2 3 日
学 位 授 与 の 要 件	課程博士(学位規則第 4 条第 1 項)
学 位 授 与 の 題 目	Molecular orientation model for film stretching process by elasto-plastic finite element analysis （有限要素法解析によるフィルム延伸過程の分子配向モデル）
論文審査委員（主査）	山田 敏郎（理工研究域・教授）
論文審査委員（副査）	太田 建彦（環境保全センター・教授）、田村 和弘（理工研究域・教授）、 金井 俊孝（自然科学研究科・客員教授）、 竹田 英俊（自然科学研究科・客員准教授）

## Abstract

Retardation film, which is one of the optical films, becomes more important material for the LCD-TVs. The thickness distribution in the film plane is a fundamental property to lead other physical properties to good performance. The uniformity of the retardation and optic axis directly influences the performance of the LCD-TVs.

In this study, the transverse direction stretching process that is called a tenter is focused. The objective is to investigate the molecular orientation mechanism in the film stretching process. This paper proposes the analysis method of the retardation and optic axis in the film stretching process in tenter.

New concept about higher-order structure of the oriented molecular chains was proposed. The entangled molecular chains contribute the stress. It is assumed that there are many oriented molecular chains that do not contribute to the stress. The successive relaxation is concerned with the only oriented molecular chains.

A new molecular orientation model has been developed by the results of finite element analysis (FEA). The model combined the results of FEA with the index ellipsoid by the increments of an index ellipsoid and the total index.

The two mechanisms were introduced in the model to explain the retardation and optic axis. The one is the orientation by the stress. The other is the orientation by the input energy. The later results from the only oriented molecular chains.

Three calculation results of the retardation and optic axis at different temperatures had good agreements with the experimental results.

## 学位論文要旨

液晶ディスプレイの発展とともに、今日までその発展を支えるさまざまな技術開発が行われてきた。その一つにプラスチックを用いた光学フィルムの発展がある。

液晶ディスプレイは、液晶分子の電場によるスイッチング機能を利用した素子を中心に、偏光板や位相差フィルム、バックライトや拡散シート等からなる複合素子である。

液晶テレビ等に用いられる液晶ディスプレイは、当初その表示品位に多くの課題を抱えていた。その一つに、コントラストや色表示の視野角依存性の問題がある。コントラストは、明表示と暗表示の輝度の差に基づく表示品位指標のひとつであるが、この値が小さいと映像は一般に見難くなる。また、カラー表示ではブラウン管テレビ等に比較してその発色性能が劣っていた。

これらの表示品位を改良するために開発された技術のひとつがいわゆる位相差フィルムである。位相差フィルムは、液晶ディスプレイの視野角依存性を低減する機能をにない、その表示品位を高めている。近年、液晶テレビの大型化や高機能化に伴い、位相差フィルムに求められる要求品質はますます厳しくなっている。位相差の値そのもの、面内の光学特性の均一性等が重要である。

位相差フィルムは、溶液キャスト法や溶融押出法で造られた原反フィルムを延伸して製造する方法が一般的である。また、位相差を発現させるために特殊な液晶をフィルムに塗布して製造する場合もある。ここでは、これら位相差フィルムのうち、延伸による位相差フィルムの製造過程に注目する。

フィルム延伸による方法は、低コストで製造できるうえ、広幅での製造が容易である等のメリットがある。しかし、フィルム延伸による高分子鎖の分子配メカニズムについては、明らかになっていない事柄も多く、性能向上のためにはその現象解明が必要不可欠であると考えた。

延伸される温度が、高分子のガラス転移温度付近であり、2倍3倍と大きな延伸倍率が加えられていること等、解析を困難にしている要素が幾つもあり、現象解明が進んでいない分野である。

フィルム延伸には、縦延伸や横延伸などの種類があるが、本論文ではテンター延伸と呼ばれる横延伸をとりあげ、分子配向モデルによる延伸機構解明を試みた。これにより、延伸過程で起こる分子配向メカニズムが明らかとなり、位相差フィルム製造におけるさまざまな問題点解決の一助となすことが可能になると考えた。

## 1. フィルム延伸過程の概要と光学特性について

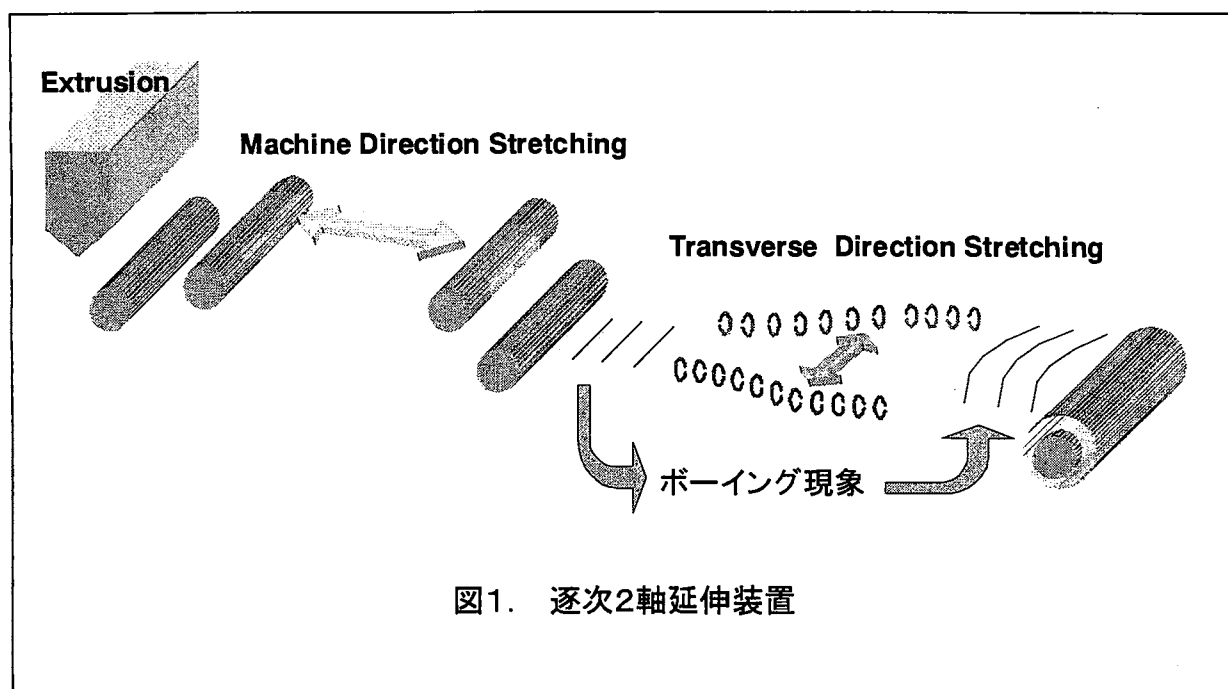
図1は、位相差フィルム製造に用いられる逐次2軸延伸装置の概略図である。フィルム延伸過程において、光学フィルムを構成している高分子の分子鎖は配向する。一般に、単純な延伸過程では、最も延伸される方向により多くの分子鎖が配向することが知られており、その配向状態と分子組成に従って光学異方性が発現する。

しかし、テンター延伸のような位相差フィルム製造装置における延伸過程では、分子鎖の配向は複雑な挙動を示すことが知られている。テンター延伸は、装置の構造上、温度分布や延伸挙動がフィルム面内で同一にならず、特に幅方向の均一性が損なわれる。

このような幅方向の不均一性の挙動は、有限要素法による解析からも明らかとなっている。山田教授らによる一連の解析より、ボーイング現象の解明がなされている。それによると、テンター延伸特有の延伸パターンによる応力状態がボーイング現象を引き起こしていることが明らかとなっている。また、フィルムの弾塑性挙動がそれに深く関わっている。ボーイング現象は、幾何形状のひずみを表わ

しているが、これに伴いレタデーションや光軸といった光学特性の乱れも生じる。

これらの光学特性は、分子鎖の微視的な配向状態によって決まり、必ずしもボーイング現象と一対一の対応をしているものではないことが経験的に知られている。特に、レタデーションは配向している分子鎖の量と相関するため、有限要素法による結果から推測することは困難であると考えられていた。



したがって、有限要素法による結果から光学特性を予測するには、分子配向構造の考察に根ざしたモデル化が必要であると考えた。有限要素法による解析は、1軸引張試験の結果である応力-ひずみ曲線を構成方程式として用い、境界条件に基づく変形形状を得ることが可能となる。また、応力やひずみといった変形に伴う物理量も得ることが可能である。これら物理量を用い新たな概念を導入することによって分子配向挙動を構築し、テンター延伸過程での分子配向挙動も解明できるのではないかと考えモデルの構築を試みた。

## 2. 高分子鎖の高次構造と延伸挙動

フィルム延伸過程における高分子鎖の高次構造は、ガラス転移温度近傍での延伸という事情もあり、絡み合い構造が力の伝達をになうゴム状高分子に似たダイナミックスを示すと考えられる。筆者らは、ゴム状弾性体の1軸延伸過程の力学モデルを構築しており、今回そのモデルを参考に、フィルム延伸過程における高分子鎖の高次構造概念の構築をおこなった。

通常、延伸前のフィルムは、分子鎖が絡み合ったシート状態を保持していると考えられる。ガラス転移温度近傍の固体状態では、分子鎖にまだ流動性はなく大きな絡み合い構造の変化は起きて

いないと考えられる。すなわち、高次構造としては、均質な絡み合い構造をもつ弾性、もしくは粘弾性挙動を示す高分子固体と考えてよい。

このフィルムに延伸が加えられると状況は劇的に変化する。フィルム延伸とともに分子鎖が配向をはじめる。弾性変形を超えた伸長が加えられると、分子鎖は流動状態ともいえる変形を受けることになる。絡み合いの強固な分子鎖の連なりは、ますます延伸され応力に寄与する。また、一部の分子鎖は絡み合いが解け、シート状態へ緩和していくものもあると考えられる。これらの様子を模式的に図2に示した。

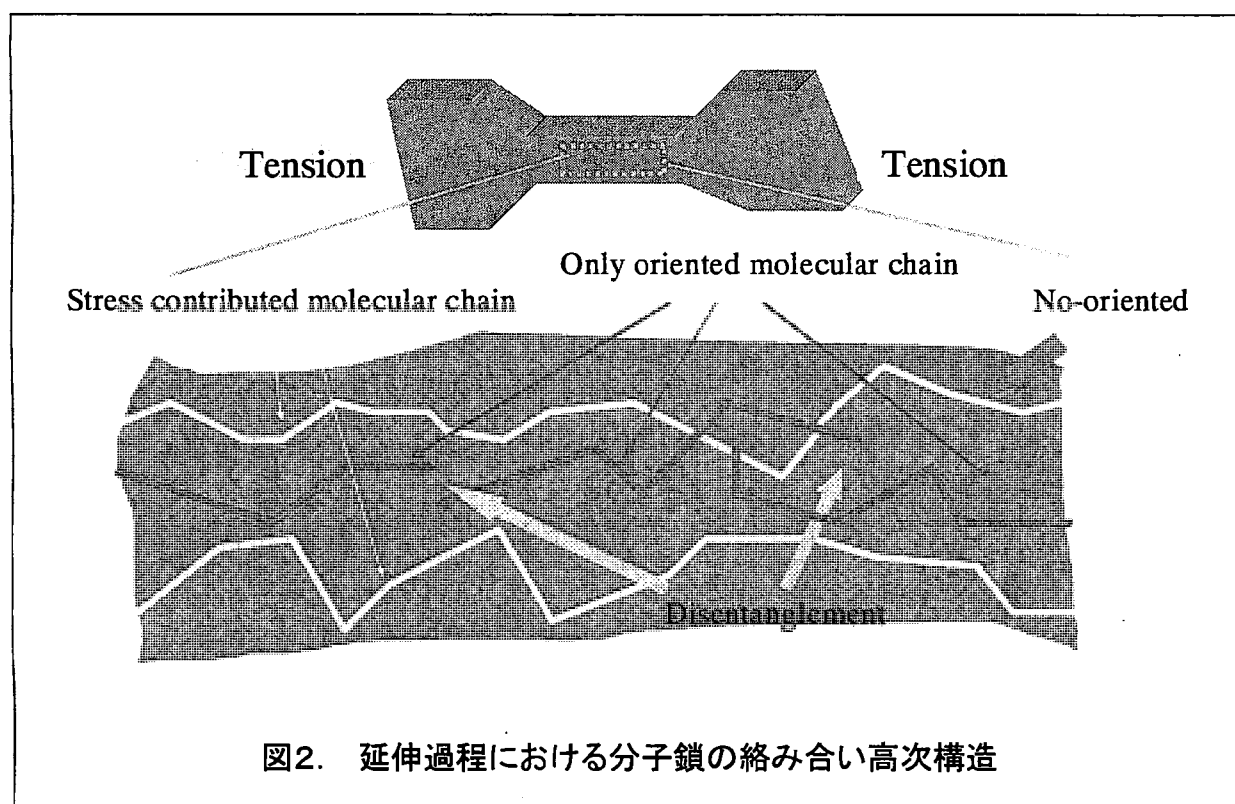


図2. 延伸過程における分子鎖の絡み合い高次構造

レタデーションの発現を目的としたフィルム延伸過程では、延伸倍率が上がるほど大きなレタデーションを示すことが経験的に知られている。塑性変形領域では、応力の増加に比較してレタデーションの増加は非常に大きくなる。このことは、延伸初期の弾性領域で見られる分子鎖の変形様式と塑性変形領域でのそれが異なっていることを示唆している。

このような考察をもとに、本研究では、分子鎖の配向が次の2種類の分子鎖からなっていると考え解析をおこなうこととした。一つは、分子鎖どうしが絡み合って力を伝達している絡み合い鎖の配向であり、もう一つは、配向後絡み合いがほどけてしまった“非伝達鎖”による配向である。

したがって、定量的には、応力に比例する配向鎖と入力エネルギーに比例する配向鎖という2種類の足し合わせにより、フィルム延伸過程における高分子鎖の配向を記述できるものと考えた。有限要素法によるフィルム延伸過程のシミュレーションから、応力やフィルムに加わるエネルギーといった量は容易に計算できる。しかし、そのためには分子鎖の配向挙動に配慮した定式化が必要である。

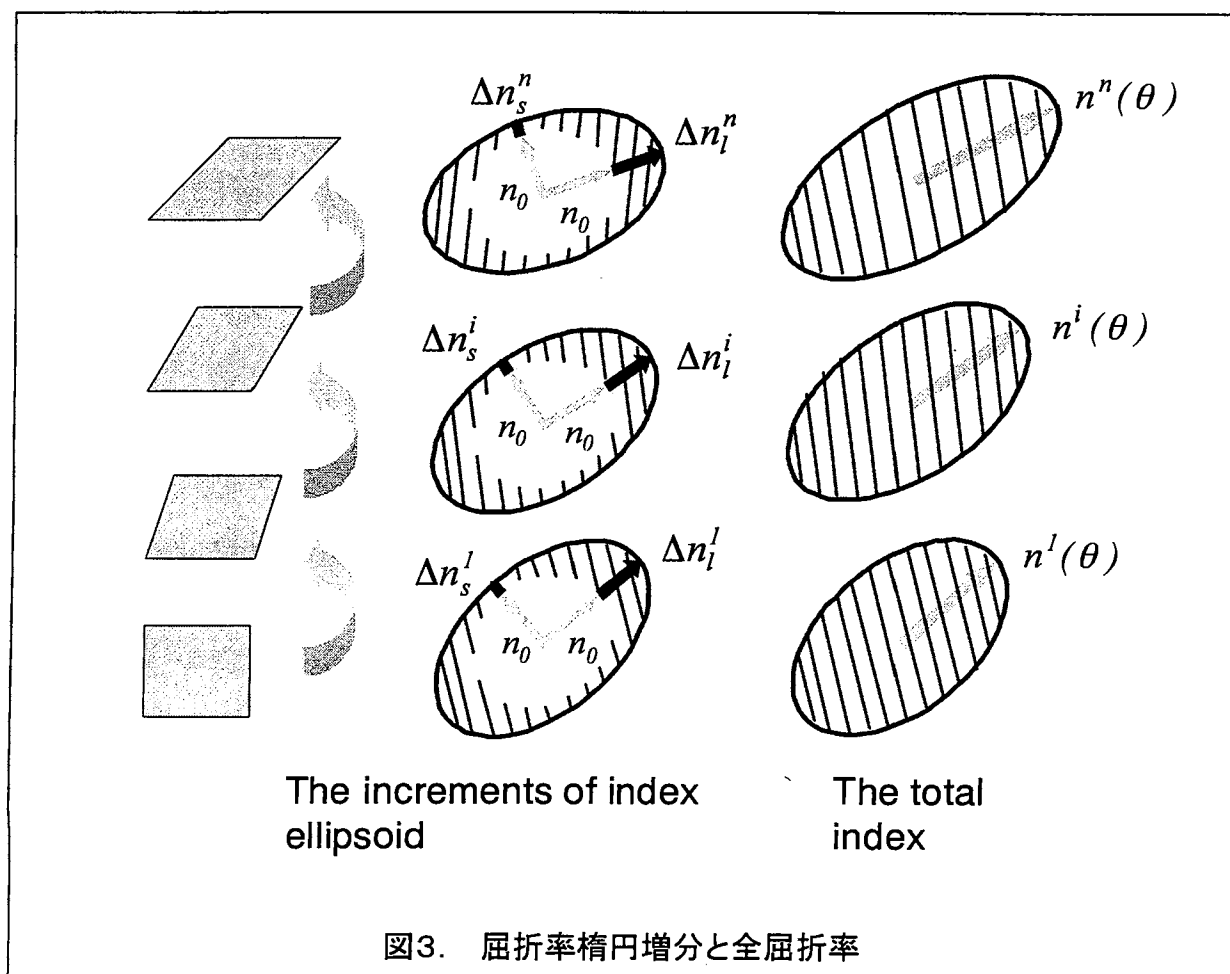
以下、この定式化の過程の概略を示す。

### 3. 分子配向モデルとその定式化

上記のような考察をもとに、分子配向モデルの定式化を試みた。その結果、3段階の過程を踏んで光軸とレタレーションの値を再現できる配向モデルを構築した。以下、この3つのモデルの概略を示す。

はじめに取り組んだ課題は、テンター延伸過程での光軸の解析である。ここでは、応力とひずみに対してそれぞれ主応力や主ひずみの値を用いて解析をおこなった。これら主値をもとに光軸ベクトルを定義した。これら主値は、せん断成分がゼロになる方向を示しており分子配向の記述に適していると考えたからである。また、逐次緩和等の効果も取り入れ、変形履歴が配向にあたえる影響をここで考慮した。

結果として、履歴の効果を取り入れることが光軸の予測には重要であることがわかった。



次の段階として、レタデーションの解析を試みた。ここでは、基礎的な知見が重要と考え、1軸引張試験時のレタデーション変化についてモデル化をおこなった。また、問題にしている光学特性は、屈折率楕円体により表現できることが知られており、その類似性を加味して、図3のように屈折率楕円増分と全屈折率の概念を導入した。これによりベクトル表示による煩雑さがなくなり簡潔な表現が可能となった。

解析の結果、レタデーション値は入力エネルギーに比例するだけでなく、逐次緩和の影響も考慮することによって実験結果をよく再現できることがわかった。

最後に、テンター延伸過程での光軸とレタデーションの同時解析を試みた。屈折率楕円増分と全屈折率の概念はそのまま用いたが、実験結果との比較や延伸挙動に対する考察から、最終的に屈折率楕円増分の計算は直交成分とせん断成分に分ける必要があると判断した。物理的にも、伸長変形とせん断変形は異なる変形挙動として認識されており、フィルム延伸のようなダイナミックな変形過程では両者の相関は少ないと考え定式化をおこなった。なお、ここでも入力エネルギー項に対する逐次緩和の効果は取り入れた。

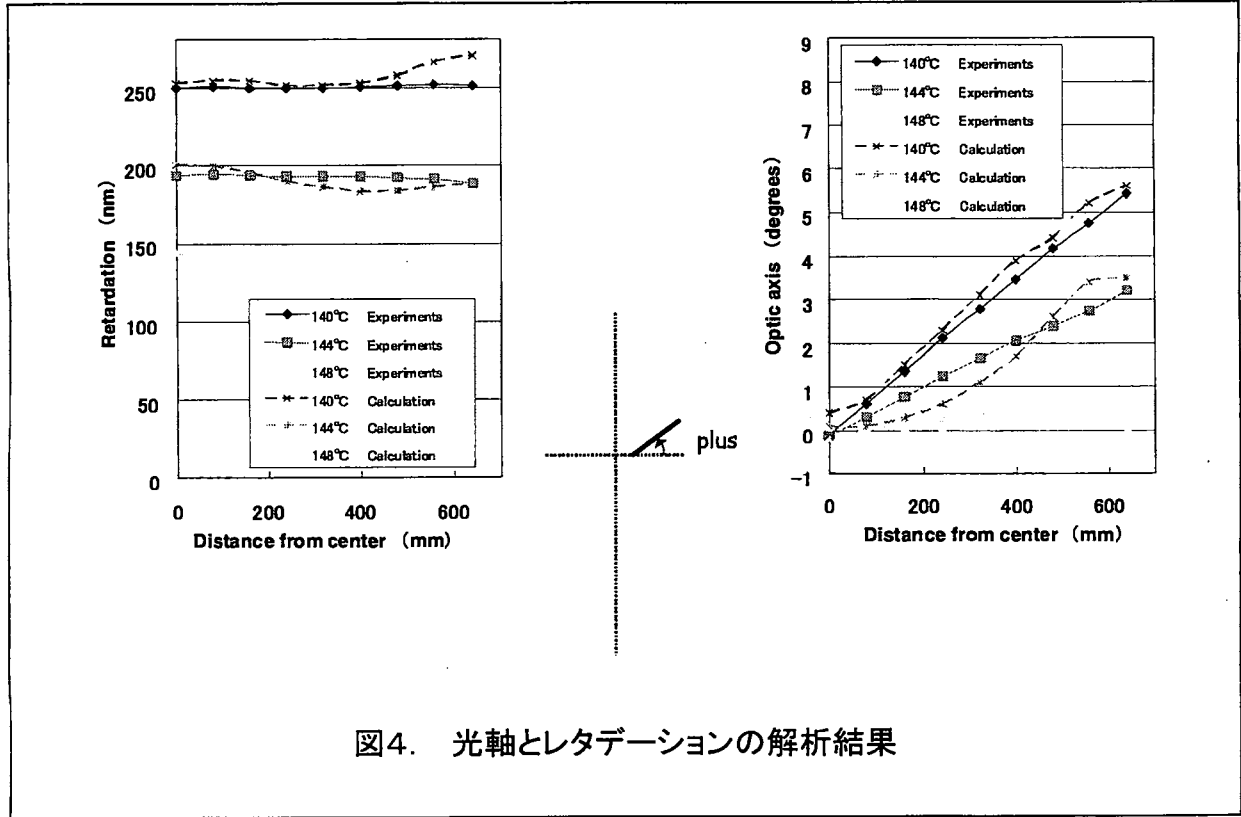


図4. 光軸とレタデーションの解析結果

また、1軸引張試験時のレタデーション解析では応力の効果を取り入れなかったが、テンター延伸における光軸とレタデーションの同時解析では、やはり応力の考慮は必須であった。これは、応力が絡み合い鎖の連なりによる分子鎖の配向によって成り立っていることを考えても物理的に納得できるところである。また、1軸引張試験時の解析と同様に入力エネルギー項に逐次緩和の効果が加味さ

れているが、これも絡み合いのない分子鎖が緩和していくという挙動を表現したものといえる。今回、140℃、144℃、148℃という3点の温度で幅方向の光軸とレタデーションの解析おこない、良い精度で実験結果との一致を見た。結果を図4に示す。

本分子配向モデルは、テンター延伸過程での光軸とレタデーションの同時解析手法として有効である。分子鎖高次構造の考察にもとづく本分子配向モデルは、有限要素法解析による結果を利用するという面においても一つの新しい方向性を示せたと考えられる。本解析手法が、フィルム延伸過程だけでなく、さまざまな高分子材料の力学や流動挙動における分子配向の研究に役立つものとして発展していくことを期待する。

## 学位論文審査結果の要旨

佐藤隆氏より提出された学位論文に関して、各審査委員によって個別に審査をした後、審査員による予備審査会を実施すると共に、平成21年1月27日に開催された口頭発表の結果を踏まえて、同日に論文審査委員会を開催して協議を行った。その結果、以下のように判定した。

液晶テレビ等に用いられる液晶ディスプレイは、当初その表示品位に多くの課題を抱えていた。これらの表示品位を改良するため位相差フィルムが開発された。位相差フィルムは、原反フィルムを延伸して製造する方法が一般的である。フィルム延伸による方法は、低コストで製造できるうえ、広幅での製造が容易である等のメリットがある。しかし、フィルム延伸時の高分子鎖の分子配向メカニズムについては明らかになっていない事柄も多く、製造にあつては勘と経験に依存した試行錯誤が続いていた。

そこで、氏は有限要素法によるフィルム延伸過程の分子配向モデルを提案し、テンター延伸過程での分子配向の指標であるレタデーションと光軸の予測を可能とした。これにより、実験で得られる値と比較して非常に良い精度で、レタデーションと光軸の値が計算できるようになった。本分子配向モデルは、延伸過程における特性の変化を再現出来ることになり、製造上不可知であった分子配向にもとづく製造条件の適正化を可能にするものである。

以上のように、ガラス転移温度近傍における大変形を伴う複雑な分子配向挙動をモデル化し、実用に耐えうる解析手法を確立したことは、学術的な面のみならずフィルム製造業界に重要な指針を与え、当該研究分野の発展に大いに寄与するものである。従って、本論文は博士(工学)の学位に値するものと判断する。